```
(C) FILE CAPLUS
```

STN CA Caesar accession number : 1562

AN - 2003:146496 CAPLUS

DN - 138:182514

TI - [(Biphenylmethyl)amino]pyridazinones and pesticides containing them

IN - Takizawa, Eiji; Okada, Itaru; Fukuchi, Toshiki

PA - Mitsubishi Chemical Corp., Japan

SO - Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 16 pp.

CODEN: JKXXAF

DT - Patent

LA - Japanese

FAN.CNT 1

PATENT NO.

KIND DATE

APPLICATION NO.

DATE

PN - JP2003055350

A2 20030226

JP 2001-240876

20010808

PRAI- JP 2001-240876

20010808

OS - MARPAT 138:182514

GI

Pesticides , esp., useful as insecticides and acaricides, contain pyridazinones I [R1 = C1-5 alkyl; R2 = H, C1-3 alkyl; R3 = C1-5 (halo)alkyl, C1-5 alkoxy; R4 = C1-8 alkyl, C1-5 haloalkyl, C1-5 (halo)alkoxy, etc.; m = 0-4; n = 0-5; X = halo]. 2-Tert-butyl-4,5-dichloro-3(2H)-pyridazinone (0.75 g) was aminated by 0.95 g 4-(4-trifluoromethoxyphenyl)benzylamine in DMF in the presence of K2CO3 at 150.degree. for 2 h to give 0.55 g I [R1 = t-Bu, R2 = H, X = C1, m = 0, (R4)n = OCF3-4], which (at 500 ppm) showed 100% insecticidal effect against Spodoptera litura on cabbage.

IT ***499213-30-8P***

RL: AGR (Agricultural use); BSU (Biological study, unclassified); BUU (Biological use, unclassified); SPN (Synthetic preparation); BIOL (Biological study); PREP (Preparation); USES (Uses)

(prepn. of [(biphenylmethyl)amino]pyridazinones as ***pesticides***
)

RN 499213-30-8 CAPLUS

CN 3(2H)-Pyridazinone, 4-chloro-2-(1,1-dimethylethyl)-5-[[[2'-(trifluoromethyl)[1,1'-biphenyl]-3-yl]methyl]amino]- (9CI) (CA INDEX NAME)

Page 1

27.01.2005 13:20:03

Page 2

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2003-55350 (P2003-55350A)

(43)公開日 平成15年2月26日(2003.2.26)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	FI	テーマコード(参考)
C 0 7 D 237/22		C 0 7 D 237/22	4H011
A 0 1 N 43/58		A 0 1 N 43/58	В
47/02	•	47/02	

審査請求 未請求 請求項の数9 OL (全 16 頁)

•	•		
(21)出願番号	特願2001-240876(P2001-240876)	(71)出顧人	000005968
			三菱化学株式会社
(22)出願日	平成13年8月8日(2001.8.8)		東京都千代田区丸の内二丁目5番2号
	•	(72)発明者	淹澤 英二
			神奈川県横浜市青紫区鴨志田町1000番地
			三菱化学株式会社内
		(72)発明者	岡田 至
			神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地
			三菱化学株式会社内
		(74)代理人	100070600
•			弁理士 横倉 康男
	·		
		1	

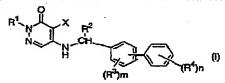
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ビリダジノン類およびこれを有効成分とする有害生物防除剤

(57)【要約】

【課題】 昆虫、ダニ類その他の農林業、水産業、畜産業、公衆衛生場面等における有害生物の防除に有用な物質を提供する。

【解決手段】 下記一般式(I)で表わされるピリダジノン類及びこれを有効成分とする有害生物防除剤。



(式中、 R^1 は $C_1 \sim C_5$ のアルキル基を、 R^2 は水素原子 $C_1 \sim C_5$ のアルキル基を、 R^3 は $C_1 \sim C_5$ のアルキル 基、 $C_1 \sim C_5$ のハロアルキル基、 $C_1 \sim C_5$ のハロアルコキシ基、ハロゲン原子を、 R^4 は $C_1 \sim C_5$ のアルキル基、 $C_1 \sim C_5$ のハロアルコキル基、 $C_1 \sim C_5$ のアルキル基、 $C_1 \sim C_5$ のハロアルコキシ基等を、 R^4 は R^4 の整数を、 R^4 0の一方の整数を、 R^4 2はハロゲン原子をそれぞれ示す。)

【特許請求の範囲】 【請求項1】 下記一般式(Ⅰ) 【化1】

(式中、 R^1 は $C_1 \sim C_5$ のアルキル基を示し、 R^2 は水素原子または $C_1 \sim C_3$ のアルキル基を示し、 R^3 は $C_1 \sim C_5$ のアルキル基、 $C_1 \sim C_5$ のアルコキシ基、 $C_1 \sim C_5$ のハロアルコキシ基またはハロゲン原子を示す。mは $0 \sim 4$ の整数を示す。 R^4 は $C_1 \sim C_8$ のアルキル基、 $C_1 \sim C_5$ のハロアルコキシ基、 $C_1 \sim C_5$ のアルコキシ基、 $C_1 \sim C_5$ のアルコキシ基、 $C_1 \sim C_5$ のアルコキシ基、 $C_1 \sim C_5$ のアルキルチオ基、 $C_1 \sim C_5$ のアルキルスルフィニル基、 $C_1 \sim C_5$ のアルキルスルカフィニル基、 $C_1 \sim C_5$ のアルキルスルボニル基またはハロゲン原子を示す。nは $0 \sim 5$ の整数を示す。Xはハロゲン原子を示す。nで表されるピリダジノン類。

【請求項2】 一般式(I)において、R!がtert-ブチル基である請求項1に記載のピリダジノン類。

【請求項3】 一般式(I)において、R2が水素原子である請求項1または2に記載のピリダジノン類。

【請求項4】 一般式(I)において、R³がメチル 基、ハロゲン原子である請求項1乃至3のいずれかに記 載のピリダジノン類。

【請求項5】 一般式(I)において、m=0である請求項1乃至3のいずれかに記載のピリダジノン類。

【請求項6】 一般式(I) において、 R^4 が $C_1 \sim C_5$ のアルコキシ基、 $C_1 \sim C_5$ のハロアルコキシ基である請求項1乃至5のいずれかに記載のピリダジノン類。

【請求項7】 一般式(I)において、Xが塩素原子、 臭素原子である請求項1乃至6のいずれかに記載のピリ ダジノン類。

【請求項8】 請求項1乃至7に記載のピリダジノン類を有効成分として含有する有害生物防除剤

【請求項9】 請求項1乃至7に記載のピリダジノン類を有効成分として含有する殺虫、殺ダニ剤。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、新規なピリダジノン類および該ピリダジノン類を有効成分として含有する有害生物防除剤に関する。本発明の新規なピリダジノン類は、各種有害生物、中でも、昆虫、ダニ類の防除に有用である。

[0002]

【従来の技術】農園芸分野では、各種害虫の防除を目的 とした様々な殺虫剤が開発され実用に供されている。し かしながら、従来汎用されている農園芸用殺虫剤は殺虫 効果、殺虫スペクトラム、あるいは残効性等の点におい て必ずしも満足すべきものではない。また、施用回数や 施用薬量の低減等の要求を満足しているとは言えないも のであった。

【0003】また、従来汎用の農薬に対して抵抗性を獲得した害虫の出現も問題となっている。例えば、野菜、果樹、花卉、茶、ムギ類およびイネ等の栽培において、様々な型の農薬、例えば、カーバメート系、ピレスロイド系、ベンゾイルウレア系、有機塩素系、有機リン系農薬等に抵抗性を獲得した種々の害虫が各地で出現しており、これらの抵抗性害虫に起因する各種病害虫の防除が年々困難になっている。

【0004】従来汎用の農園芸用殺虫剤に抵抗性を獲得した各種害虫に対しても低薬量で十分な防除効果を示し、しかも環境への悪影響が少ない新規な殺虫剤の開発が切望されている。殺ダニ剤についても、従来汎用の殺ダニ剤に抵抗性を示すダニ類に対しても優れた防除効果を示し、安全性の高い殺ダニ剤の開発が期待されている。

【0005】これらの要望に応え、新しい殺中剤、殺ダニ剤が種々提案されているが、必ずしも、上記要望に応え得るものではない。特開昭61-10561号公報および特開平3-56466号公報には、ピリダジノン類が殺虫、殺ダニ活性を有することが記載されている。しかして特開昭61-10561号公報にはピリダジノン環が硫黄原子又は酸素原子を介してベンジル基と結合した化合物に限られており、ピリダジノン環が窒素原子を介してフェニルベンジル基と結合した化合物については全く記載がない。

【0006】特開平 3-56466 号公報にも類似の構造の ピリダジノン類が記載されており、ベンゼン環上の置換 基がフルオロアルコキシアルコキシ基のものが記載され ているが、置換フェニル基のものについては記載がな い。またピリダジノン環とベンジル基が窒素原子を介し て結合している化合物については以下の化合物のみが記載されているが、この化合物の殺虫、殺ダニ効果につい ては記載がない。

[0007]

【化2】

【0008】本発明と類似の5-ベンジルアミノピリダジノン類が特公平6-76390号、Heterocycles、36巻4号785頁(1993)に記載されている。特公平6-76390号は抗アレルギー効果を有するピリダジノン化合物に関し、ピリダジノンの2-位が水素原子、メチル基、アルケニル基(炭素数3~6)、シクロアルキル基(炭素数5または6)、ベンジル基、フェニル基等、4-位が塩素原子または臭素原子、ベンゼン環上の置換基がアルコキシ基等

の化合物の記載があるが、ピリダジノンの2-位が、 C_{5} のアルキル基の化合物に関する記載はない。勿論 殺虫、殺ダニ剤等の農薬としての用途は記載されていない。また、Heterocycles、36 巻4号785頁 (1993) にはピリダジノンの2-位 がメチル基、フェニル基、4-位 が塩素原子または臭素原子、ベンゼン環上の置換基がメトキシ基等、ベンジル基の $\alpha-d$ が水素原子、メチル基の化合物の記載があるが、ピリダジノン類とベンジルアミン類との反応条件、メカニズムの考察があるのみであり、その農薬としての用途は記載されていない。

[0009]

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、昆虫、ダニ類などの有害生物の防除に有用な新しい物質を提供することにあり、特に従来の殺虫剤に抵抗性を示す各種害虫に対しても高い防除効果を示し、更に低薬量で効果を奏し、残留毒性や環境汚染等の問題が軽減された安全性の高い物質を提供することにある。

[0010]

【課題を解決するための手段】本発明者等は上記の課題 を解決すべく鋭意検討した結果、上記の特徴を満足する 新規なピリダジノン化合物を見いだし、本発明を完成す るに至った。即ち、本発明の要旨は、下記一般式 (I)

[0011]

【化3】

$$R^1$$
 N
 K^2
 K^3
 K^4
 K^4
 K^3

[0013]

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳細に説明する。前記一般式(1)で表される本発明のピリダジノン化合物において、置換基R¹は、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、sec-ブチル基、イソブチル基、セrt-ブチル基、ペンチル基、2-メチルブチル基、3-メチルブチル基、イソペンチル基、2-エチルプロピル基、ネオペンチル基、2,2-ジメチルプロピル基、

2-メチルイソブチル基等のC1~C5の直鎖もしくは分岐 鎖アルキル基を示す。R¹としてはC₃~C₄の分岐鎖ア ルキル基が好ましく、特にtert-ブチル基が好ましい。 R² は、水素原子;メチル基、エチル基、プロピル基、 イソプロピル基等のC1~C3の直鎖もしくは分岐鎖アル キル基を示す。R2としては水素原子が好ましい。R3 は、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル 基、n-ブチル基、sec-ブチル基、イソブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、2-メチルブチル基、3-メチル ブチル基、イソペンチル基、2-エチルプロピル基、ネオ ペンチル基、2,2-ジメチルプロピル基、2-メチルイソブ チル基等のC1~C5の直鎖または分岐鎖アルキル基:フ ルオロメチル基、クロロメチル基、ブロモメチル基、ジ フルオロメチル基、ジフルオロエチル基、トリフルオロ メチル基、トリクロロメチル基、トリブロモメチル基、 2-フルオロエチル基、2,2,2-トリフルオロエチル基、1-(トリフルオロメチル) エチル基、1,1,2,3,3,3-ヘキサ フルオロプロピル基、2.2.3.3.3-ペンタフルオロプロピ ル基、2,2,3,3-テトラフルオロプロピル基、2,2,3,3,4, 4.4~ヘプタフルオロブチル基、2.2.3.3.4.4.5.5.5-ノナ フルオロペンチル基等のC₁~C₅の直鎖または分岐鎖ハ ロアルキル基:メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ 基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、sec-ブトキシ 基、イソブトキシ基、tert-ブトキシ基、n-ペントキシ 基、2-メチルブトキシ基、3-メチルブトキシ基、イソペ ントキシ基、2-エチルプロトキシ基、ネオペントキシ 基、2,2-ジメチルプロポキシ基、2-メチルイソブトキシ 基、等のC1~C5の直鎖または分岐鎖アルコキシ基:ジ フルオロメトキシ基、トリフルオロメトキシ基、フルオ ロメトキシ基、トリクロロメトキシ基、トリブロモメト キシ基、2-フルオロエトキシ基、2,2,2-トリフルオロエ トキシ基、2,2,2-トリクロロエトキシ基、1-(トリフル オロメチル) エトキシ基、1,1,2,3,3,3-ヘキサフルオロ プロポキシ基、2,2,3,3,3-ペンタフルオロプロポキシ 基、2,2,3,3-テトラフルオロプロポキシ基、2,2,3,3,4, 4,4-ヘプタフルオロブトキシ基、2,2,3,3,4,4,5,5,5-ノ ナフルオロペントキシ基等のC1~C5の直鎖または分岐 鎖ハロアルコキシ基;フッ素原子、塩素原子、臭素原 子、ヨウ素原子等のハロゲン原子を示す。このうち、置 換基R³としてはメチル基またはハロゲン原子が好まし い。また、mは0~4の整数であるが、0である場合も 好ましい。Xはフッ素原子、塩素原子、臭素原子等のハ ロゲン原子を示す。Xとしては、塩素原子、臭素原子が 好ましく、特に塩素原子が好ましい。置換基R⁴は、メ チル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、シ クロプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、イソブチ ル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、2-メチルブチル 基、3-メチルブチル基、イソペンチル基、2-エチルプロ ピル基、ネオペンチル基、2,2-ジメチルプロピル基、2-メチルイソブチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、nオクチル基等のC₁~C₈の直鎖または分岐鎖アルキル 基;フルオロメチル基、クロロメチル基、ブロモメチル 基、ジフルオロメチル基、ジフルオロエチル基、トリフ ルオロメチル基、トリクロロメチル基、トリブロモメチ ル基、2-フルオロエチル基、2,2,2-トリフルオロエチル 基、1-(トリフルオロメチル) エチル基、1,1,2,3,3,3-ヘキサフルオロプロピル基、2,2,3,3,3-ペンタフルオロ プロピル基、2,2,3,3-テトラフルオロプロピル基、2,2, 3.3,4.4,4-ヘプタフルオロブチル基、2,2,3,3,4,4,5,5, 5-ノナフルオロペンチル基等のC₁~C₅の直鎖または分 岐鎖ハロアルキル基;メトキシ基、エトキシ基、n-プロ ポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、sec-ブト キシ基、イソブトキシ基、tert-ブトキシ基、n-ペント キシ基、2-メチルブトキシ基、3-メチルブトキシ基、イ ソペントキシ基、2-エチルプロトキシ基、ネオペントキ シ基、2,2-ジメチルプロポキシ基、2-メチルイソブトキ シ基、n-ヘキシルオキシ基、n-ヘプチルオキシ基、n-オ クチルオキシ基等のC1~Cgの直鎖または分岐鎖アルコ キシ基;ジフルオロメトキシ基、トリフルオロメトキシ 基、フルオロメトキシ基、トリクロロメトキシ基、トリ ブロモメトキシ基、2-フルオロエトキシ基、2,2,2-トリ フルオロエトキシ基、2,2,2-トリクロロエトキシ基、1-(トリフルオロメチル) エトキシ基1,1,2,3,3,3-ヘキサ フルオロプロポキシ基、2,2,3,3,3-ペンタフルオロプロ ポキシ基、2,2,3,3-テトラフルオロプロポキシ基、2,2, 3,3,4,4,4-ヘプタフルオロブトキシ基等のC₁~C₅の直 鎖または分岐鎖ハロアルコキシ基;メチルチオ基、エチ ルチオ基、プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、ブチ ルチオ基、sec-ブチルチオ基、イソブチルチオ基、tert -ブチルチオ基、ペンチルチオ基、2-メチルブチルチオ 基、3-メチルブチルチオ基、イソペンチルチオ基、2-エ

チルプロピルチオ基、ネオペンチルチオ基、2,2-ジメチ ルプロピルチオ基、2-メチルイソブチルチオ基等のC、 ~C5の直鎖または分岐鎖アルキルチオ基;メチルスル フィニル基、エチルスルフィニル基、プロピルスルフィ ニル基、イソプロピルスルフィニル基、ブチルスルフィ ニル基、sec-ブチルスルフィニル基、イソブチルスルフ ィニル基、tert-ブチルスルフィニル基、ペンチルスル フィニル基、2-メチルブチルスルフィニル基、3-メチル ブチルスルフィニル基、イソペンチルスルフィニル基。 2-エチルプロピルスルフィニル基、ネオペンチルスルフ ィニル基、2,2-ジメチルプロピルスルフィニル基、2-メ チルイソブチルスルフィニル基等のC1~C5の直鎖また は分岐鎖アルキルスルフィニル基;メチルスルホニル 基、エチルスルホニル基、プロピルスルホニル基、イソ プロピルスルホニル基、ブチルスルホニル基、sec-ブチ ルスルホニル基、イソブチルスルホニル基、tert-ブチ ルスルホニル基、ペンチルスルホニル基、2-メチルブチ ルスルホニル基、3-メチルブチルスルホニル基、イソペ ンチルスルホニル基、2-エチルプロピルスルホニル基、 ネオペンチルスルホニル基、2,2-ジメチルプロピルスル ホニル基、2-メチルイソブチルスルホニル基等のC₁~ C5の直鎖または分岐鎖アルキルスルホニル基;フッ素 原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原 子を示す。R4としてはトリフルオロメトキシ基または ジフルオロメトキシ基が好ましい。また、置換位置とし ては4-位のものが好ましい。

【0014】前記一般式(I)で示される本発明の化合物は新規化合物であり、例えば下記反応式に従って製造することができる。

【0015】 【化4】

【 O O 1 6 】 (上記式中、R¹、R²、R³、R⁴、X、m および n は前記一般式 (I)で定義した通りである。)即ち、ピリダジノン類(II)とベンジルアミン類(III)を、塩基の存在下または非存在下、好ましくは溶媒を用いて、10~200 ℃、好ましくは100~150 ℃で反応させる。溶媒としては、本反応に直接関与しないものであれば特に限定されず、例えばベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素;アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類;クロロホルム、ジクロロメタン等のハロゲン化炭化水素類;水;酢

酸エチル、酢酸メチル等のエステル類;またはテトラヒドロフラン、アセトニトリル、ジオキサン、N,Nージメチルホルムアミド、Nーメチルピロリドン、ジメチルスルホキシド、ピリジン等の極性溶媒等を挙げることができる。塩基としては、例えば水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物;水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属水酸化物;炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等のアルカリ金属炭酸塩;無機塩類;ピリジン、トリエチルアミン等のアミン類等を挙げることができる。【0017】反応後、目的物である一般式(I)の化合物

を単離するには、水に溶解する溶媒を用いた場合は、減圧下溶媒を留去し、水を加えた後、水に不溶のベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素;クロロホルム、ジクロロメタン等のハロゲン化炭化水素;酢酸エチル等のエステル類で抽出し、飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウム、無水硫酸マグネシウム等の乾燥剤で乾燥し、減圧下で溶媒を留去すれば良い。水に不溶の溶媒を用いた場合は、反応混合物に水を加えた後分液し、有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウム、無水硫酸マグネシウム等の乾燥剤で乾燥し、減圧下で溶媒を留去すれば良い。溶媒留去後得られた残渣を、再結

【0018】原料の一般式(II)で示される化合物は、例えば特開昭61-10560、特開昭61-10561号公報に記載の方法で合成することができる。原料の一般式(III)で示される化合物は、以下の方法で合成することができる。(1)フェニルベンゾニトリル類の還元

[0019]

【化5】

【 0 0 2 0 】 (上記式中R³、R⁴、mおよびnは前記一 般式 (I)で定義した通りである。)

フェニルベンゾニトリル類(IV)と水素を金属触媒、アンモニア水存在下、好ましくは溶媒を用いて、0~100 C、好ましくは25~50 ℃で反応させる。溶媒としては、木反応に直接関与しないものであれば特に限定されず、例えばメタノール、エタノール、イソプロパノール等のアルコール類;ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素;アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類;クロロホルム、ジクロコメタン等のハロゲン化炭化水素類;水;酢酸メチル、酢酸エチル等のエステル類;またはテトラヒドロフラン、アセトニトリル、ジオキサン、N,N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、ジメチルスルホキシド、ピリジン等の極性溶媒等を挙げることができる。金

属触媒としては、例えばラネーニッケル、パラジウムカーボン、酸化白金などをを挙げることができる。反応後、目的物である一般式(IIIa)の化合物を単離するには、反応混合物より金属触媒をろ別した後減圧下溶媒を留去すればよい。そのままでも十分純品であることもあるが、要すれば蒸留、カラムクロマトグラフィー等の手段で精製すれば純品が得られる。

【0021】フェニルベンゾニトリル類(IV)は公知の方法例えばsynthetic Communications, 11巻、513頁(1981)記載の方法により対応するハロアレーン類とフェニルボロン酸類を0価パラジウム触媒、塩基存在下反応させることにより合成することが出来る。

(2)オキシム類の還元

[0022]

【化6】

$$(\mathbb{R}^3)_{\text{IM}} \qquad \qquad (\mathbb{R}^4)_{\text{IN}} \qquad \qquad (\mathbb{R}^4)_{\text{IN}} \qquad (\mathbb{R}^4$$

【0023】(上記式中R²、R³、R⁴、mおよびnは前記一般式(I)で定義した通りである。) オキシム類(V)と水素を金属触媒、アンモニア水存在下、好ましくは溶媒を用いて、0~100 ℃、好ましくは25~50 ℃で反応させる。溶媒としては、本反応に直接関与しないものであれば特に限定されず、例えばメタノール、エタノール、イソプロパノール等のアルコール類;ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素;アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類;クロロメタン等のハロ

ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素;アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類;クロロホルム、ジクロロメタン等のハロゲン化炭化水素類:水:酢酸メチル、酢酸エチル等のエステル類;またはテトラヒドロフラン、アセトニトリル、ジオキサン、N,N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、ジメチルスルホキシド、ピリジン等の極性溶媒等を挙げることができる。金属触媒としては、例え

ばラネーニッケル、パラジウムカーボン、酸化白金などを挙げることができる。反応後、目的物である一般式(I IIb)の化合物を単離するには、反応混合物より金属触媒をろ別した後減圧下溶媒を留去すればよい。オキシム類(V)は公知の方法により対応するアセトフェノン類とヒドロキシルアミン類を炭酸カリウム存在下反応させることにより合成することが出来る。

【0024】一般式(I)の化合物は、害虫、ダニその他有害生物の防除効果を有し、例えば農業・林業・畜産業・水産業及びこれら産業の製品保存場面や公衆衛生などの広範囲の場面において、有害生物の忌避や駆除・防除等に有効である。特に本発明化合物は、農業、林業等、具体的には農作物の育成時や、収穫物及び樹木、観賞用植物等に損害を与える有害生物や、公衆衛生場面における有害生物の忌避、駆除・防除等に用いる殺虫剤、殺ダ

二剤として、優れた効果を発揮する。

【0025】以下に具体的な使用場面、対象有害生物、 使用方法等を示すが、本発明は以下の記載に限定される ものではない。さらに具体的に例示した有害生物は、対 象とする有害生物に限定されるものではなく、また例示 した有害生物は、その成虫、幼虫、卵等をも含むもので ある。

(A) 農業、林業場面等;本発明化合物は、農作物、例 えば食用作物(稲、麦類、とうもろこし、馬鈴薯、甘 藷、豆類等)、野菜(アブラナ科作物、うり類、なす、 トマト、ネギ類等)、果樹(柑橘類、りんご、ぶどう、 もも等)、特用作物(たばこ、茶、甜菜、サトウキビ、 綿、オリーブ等)、牧草・飼料用作物(ソルガム類、イ ネ科牧草、豆科牧草等)や観賞用植物(草本・花卉類、 庭木等)などの育成場面に際して、これらに損害を与え る節足動物類、軟体動物類、線虫類等や各種菌類等の有 害生物の忌避、防除等に有効である。更に、本発明化合 物は上述の作物からの収穫物、例えば穀類、果実、木の 実、香辛料及びタバコ等や、これらに乾燥、粉末化等の 処理を施した製品を貯蔵する際における、有害生物の忌 避、駆除等にも有効である。また立木、倒木、加工木 材、貯蔵木材等を、シロアリ類や甲虫類等の有害生物に よる被害から保護する上でも有効である。

【0026】具体的な有害生物としては例えば、節足動 物門、軟体動物門及び線形動物門に属するものとして、 以下のものを挙げることができる。節足動物門昆虫綱と しては、以下のものを例示することができる。鱗翅目と しては、例えばハスモンヨトウ、オオタバコガ、ヨトウ ガ、タマナギンウワバ等のヤガ科;コナガ等のスガ科: チャノコカクモンハマキ、ナシヒメシンクイ等のハマキ ガ科;ミノガ等のミノガ科;ギンモンハモグリガ等のハ モグリガ科;キンモンホソガ等のホソガ科;ネギコガ等 のアトヒゲコガ科; コスカシバ等のスカシバガ科; カキ ノヘタムシガ等のニセマイコガ科: ワタアカミムシ等の キバガ科; モモシンクイガ等のシンクイガ科; イラガ等 のイラガ科; コブノメイガ、ニカメイチュウ、ワタヘリ クロノメイガ等のメイガ科:イチモンジセセリ等のセセ リチョウ科; アゲハ等のアゲハチョウ科; モンシロチョ ウ等のシロチョウ科; ウラナミシジミ等のシジミチョウ 科;ヨモギエダシャク等のシャクガ科;エビガラスズメ 等のスズメガ科: モンクロシャチホコ等のシャチホコガ 科;チャドクガ等のドクガ科;アメリカシロヒトリ等の ヒトリガ科などを挙げることができる。

【 0 0 2 7 】 甲虫目としては、例えばドウガネブイブイ、コアオハナムグリ、マメコガネ等のコガネムシ科;ミカンナガタマムシ等のタマムシ科;マルクビクシコメツキ等のコメツキムシ科;ニジュウヤホシテントウ等のテントウムシ科;ゴマダラカミキリ、ブドウトラカミキリ等のカミキリムシ科;ウリハムシ、キスジノミハムシ、イネドロオイムシ等のハムシ科;モモチョッキリゾ

ウムシ等のオトシブミ科; アリモドキゾウムシ等のミツギリゾウムシ科; クリシギゾウムシ、イネミズゾウムシ等のゾウムシ科などを挙げることができる。

【0028】半翅目としては、例えばチャバネアオカメ ムシ、クサギカメムシ等のカメムシ科;ナシカメムシ等 のクヌギカメムシ科;ホソハリカメムシ等のヘリカメム シ科; クモヘリカメムシ等のホソヘリカメムシ科; アカ ホシカメムシ等のホシカメムシ科; ナシグンバイ等のグ ンバイムシ科;ウスミドリメクラガメ等のメクラカメム シ科;ニイニイゼミ等のセミ科;ブドウアワフキ等のア ワフキムシ科:シロオオヨコバイ等のオオヨコバイ科; フタテンヒメヨコバイ、チャノミドリヒメヨコバイ等の ヒメヨコバイ科;ツマグロヨコバイ等のヨコバイ科;ヒ メトビウンカ、トビイロウンカ等のウンカ科;アオバハ ゴロモ等のアオバハゴロモ科:ナシキジラミ等のキジラ ミ科;オンシツコナジラミ、シルバーリーフコナジラミ 等のコナジラミ科; クリイガアブラムシ等のフィロキセ ラ科;リンゴワタムシ等のタマワタムシ科;ワタアブラ ムシ、モモアカアブラムシ、オカボノアカアブラムシ等 のアブラムシ科: イセリアカイガラムシ等のワタフキカ イガラムシ科;ミカンコナカイガラムシ等のコナカイガ ラムシ科;ルビーロウムシ等のカタカイガラムシ科;ナ シマルカイガラ、クワシロカイガラ等マルカイガラムシ 科などを挙げることができる。

【0029】アザミウマ目としては、ミカンキイロアザ ミウマ、チャノキイロアザミウマ、ミナミキイロアザミ ウマ等のアザミウマ科;カキクダアザミウマ、イネクダ アザミウマ等のクダアザミウマ科などを挙げることがで きる。膜翅目としては、例えばカブラハバチ等のハバチ 科;リンゴハバチ等のミフシハバチ科;クリタマバチ等 のタマバチ科;バラハキリバチ等のハキリバチ科などを 挙げることができる。双翅目としては、例えばダイズサ ヤタマバエ等のタマバエ科; ウリミバエ等のミバエ科; イネミギワバエ等のミギワバエ科;オウトウショウジョ ウバエ等のショウジョウバエ科;ナモグリバエ、マメハ モグリバエ等のハモグリバエ科; タマネギバエ等のハナ バエ科などを挙げることができる。直翅目としては、例 えばクサキリ等のキリギリス科;アオマツムシ等のコオ ロギ科;ケラ等のケラ科;コバネイナゴ等のバッタ科な どを挙げることができる。トビムシ目としては、例えば キマルトビムシ等のマルトビムシ科;マツモトシロトビ ムシ等のシロトビムシ科などを挙げることができる。シ ロアリ目としては、例えばタイワンシロアリ等のシロア リ科が、ハサミムシ目としては、例えばオオハサミムシ 等のオオハサミムシ科などを例示することができる。

【0030】節足動物門甲殼網及びクモ網としては、以下のものを例示することができる。甲殼綱の等脚目としては、例えばオカダンゴムシ等のダンゴムシ科が挙げることができる。クモ綱のダニ目としては、例えばチャノホコリダニ、シクラメンホコリダニ等のホコリダニ科;

ムギダニ等のハシリダニ科:ブドウヒメハダニ等のヒメ ハダ二科;ナミハダニ、カンザワハダニ、ミカンハダ ニ、リンゴハダニ等のハダニ科;ミカンサビダニ、リン ゴサビダニ、ニセナシサビダニ等のフシダニ科;ケナガ コナダニ等のコナダニ科等を挙げることができる。

【0031】軟体動物門腹足門として、腹足綱の中腹足 目としては、例えばスクミリンゴガイ等を、柄眼目とし ては例えばアフリカマイマイ、ナメクジ、ニワコウラナ メクジ、チャコウラナメクジ、ウスカワマイマイ等を挙 げることができる。線形動物門幻器網及び尾線網として は、以下のものを例示することができる。幻器綱ハリセ ンチュウ目としては、例えばイモグサレセンチュウ等の アングイナ科; ナミイシュクセンチュウ等のティレンコ リンクス科; キタネグサレセンチュウ、ミナミネグサレ センチュウ等のプラティレンクス科;ナミラセンチュウ 等のホプロライムス科;ジャガイモシストセンチュウ等 のヘテロデラ科: サツマイモネコブセンチュウ等のメロ イドギネ科: ワセンチュウ等のクリコネマ科: イチゴメ センチュウ等のノトティレンクス科; イチゴセンチュウ 等のアフェレンコイデス科などを例示することができ る。尾腺綱ニセハリセンチュウ目としては、例えばオオ ハリセンチュウ等のロンギドルス科 ; ユミハリセンチュ ウ等のトリコドルス科などを挙げることができる。

【0032】さらに本発明化合物は、天然林、人工林な らびに都市緑地等の樹木を加害或いは樹勢に影響を与え る有害生物の忌避、防除・駆除等にも有効である。この 様な場面において、具体的な有害生物としては以下のも のを挙げることができる。節足動物門昆虫綱及びクモ綱 としては、以下のものを例示することができる。鱗翅目 としては、例えばスギドクガ、マイマイガ等のドクガ 科:マツカレハ、ツガカレハ等のカレハガ科:カラマツ マダラメイガ等のメイガ科;カブラヤガ等のヤガ科;カ ラマツイトヒキハマキ、クリミガ、スギカサガ等のハマ キガ科:アメリカシロヒトリ等のヒトリガ科:シイモグ リチビガ等のモグリチビガ科;ヒロヘリアオイラガ等の イラガ科などを挙げることができる。

【0033】また、甲虫目としては、例えばヒメコガ ネ、ナガチャコガネ等のコガネムシ科;ケヤキナガタマ ムシ等のタマムシ科;マツノマダラカミキリ等のカミキ リムシ科;スギハムシ等のハムシ科;サビヒョウタンゾ ウムシ、マツノシラホシゾウムシ等のゾウムシ科;オオ ゾウムシ等のオサゾウムシ科;マツノキクイムシ、イタ ヤキクイムシ等のキクイムシ科;コナナガシンクイムシ 等のナガシンクイムシ科などを例示することができる。

【0034】半翅目としては、例えばトドマツオオアブ ラムシ等のアブラムシ科; エゾマツカサアブラ等のカサ アブラムシ科;スギマルカイガラムシ等のマルカイガラ ムシ科; ツノロウムシ等のカタカイガラムシ科などを挙 げることができる。膜翅目としては、例えばカラマツア カハバチ等のハバチ科;マツノキハバチ等のマツハバチ 科: クリタマバチ等のタマバチ科などを挙げることがで きる。双翅目としては、例えばキリウジガガンボ等のガ ガンボ科;カラマツタネバエ等のハナバエ科;成虫、幼 虫及び卵を含むスギタマバエ、マツシントメタマバエ等 のタマバエ科などを挙げることができる。

【0035】クモ綱のダニ目としては、例えばスギノハ ダニ、トドマツノハダニ等を挙げることができる。線形 動物門幻器綱ハリセンチュウ目としては、例えばマツノ ザイセンチュウ等のパラシタフェレンクス科などを挙げ ることができる。本発明化合物を有効成分とする有害生 物防除剤は、上述した農業や林業場面等において有効な 製剤、及び製剤によって調製された任意の使用形態で、 単独又は他の活性化合物、例えば殺虫剤、殺ダニ剤、殺 線虫剤、殺菌剤、共力剤、植物調整剤、除草剤及び毒餌 等と併用又は混合剤として使用することが出来る。より 具体例な活性化合物として、以下のものを例示すること ができるが、これらに限定されるものではない。

【0036】殺虫・殺ダニ剤等の活性化合物:有機燐剤 としては、例えばジクロルボス、フェニトロチオン、マ ラチオン、ナレド、クロルピリホス、ダイアジノン。テ トラクロルビンホス、フェンチオン、イソキサチオン、 メチダチオン、サリチオン、アセフェート、ジメトン-S メチル、ジスルフォトン、モノクロトホス、アジンホス メシル、パラチオン、ホサロン、ピリミホスメチル、プ ロチオホス等を挙げることができる。カーバメイト剤と しては、例えばメトルカルブ、フェノブカルブ、プロポ クスル、カルバリル、エチオフェンカルブ、ピリミカル ブ、ベンダイオカルブ、カルボスルファン、カルボフラ ン、メソミル、チオジカルブ等を挙げることができる。 有機塩素剤としては、例えばリンデン、DDT、エンドサ ルファン、アルドリン、クロルデン等を挙げることがで きる。ピレスロイド剤としては、例えばペルメトリン、 シペルメトリン、デルタメトリン、シハロトリン、シフ ルトリン、アクリナトリン、フェンバレレート、エトフ ェンプロックス、シラフルオフェン、フルバリネート、 フルシトリネート、ビフェントリン、アレスリン、フェ ノトリン、フェンプロパトリン、シフェノトリン、フラ メドリン、レスメトリン、トランスフルスリン、プラレ トリン、フルフェンプロックス、ハロファンプロック ス、イミプロトリン等を挙げることができる。ネオニコ チノイド剤としては、例えばイミダクロプリド、ニテン ピラム、アセタミプリド、テフラニトジン、チアメトキ サム、チアクロプリド等を挙げることができる。

【0037】フェニルベンゾイルウレア剤等の昆虫成長 制御剤としては、例えばジフルベンズロン、クロロフル アズロン、トリフルムロン、フルフェノクスロン、ヘキ サフルムロン、ルフェヌロン、テフルベンズロン、ブプ ロフェジン、テブフェノジド、クロマフェノジド、メト キシフェノジド、シロマジン等を挙げることができる。

【0038】幼若ホルモン剤としては、例えばピリプロ

キシフェン、フェノキシカルブ、メソプレン、ヒドロプレン等を挙げることができる。微生物により生産される 殺虫性物質としては、例えばアバメクチン、ミルベメク チン、ニッコーマイシン、エマメクチンベンゾエート、 イベルメクチン、スピノサドー等を挙げることができ る。

【0039】その他の殺虫剤として、例えばカルタップ、ベンスルタップ、クロルフェナビル、ジアフェンチウロン、硫酸ニコチン、メタアルデヒド、フィプロニル、ピメトロジン、インドキサカルブ、トルフェンピラド等を挙げることができる。殺ダニ剤の活性化合物として、例えばジコホル、フェニソブロモレート、ベンリナクチン複合体、アミトラジホン、ポリナクチン複合体、アミトリシズ、プロパルギル、酸化フェンブラド、ピリダベンフェンピロキシメート、ピリミジフェン、フェナザキン、クロフェンテジン、ヘキシチアゾクス、アセキノシル、キノメチオネート、フェノチオカルブ、エトキサゾール、ビフェナゼート等を挙げることができる。

【0040】殺線虫剤の活性化合物として、例えばメチ ルイソシアネート、ホスチアゼート、オキサミル、メス ルフェンホス等を挙げることができる。毒餌としては、 例えばモノフルオロ酢酸、ワルファリン、クマテトラリ ル、ダイファシン等を挙げることができる。殺菌剤の活 性化合物としては、例えば無機銅、有機銅、硫黄、マン ネブ、チウラム、チアジアジン、キャプタン、クロロタ ロニル、イプロベンホス、チオファネートメチル、ベノ ミル、チアベンダゾール、イプロジオン、プロシミド ン、ペンシクロン、メタラキシル、サンドファン、バイ レトン、トリフルミゾール、フェナリモル、トリホリ ン、ジチアノン、トリアジン、フルアジナム、プロベナ ゾール、ジエトフェンカルブ、イソプロチオラン、ピロ キロン、イミノクタジン酢酸塩、エクロメゾール、ダゾ メット、クレソキシムメチル等を挙げることができる。 【0041】除草剤等の活性化合物としては、例えばビ アラホス、セトキシジム、トリフルラリン、メフェナセ ット等を挙げることができる。植物調整剤の活性化合物 としては、例えばインドール酪酸、エテホン、4-CPA等 を挙げることができる。忌避剤の活性化合物としては、 例えばカラン-3,4-ジオール、N,N-ジエチル-m-トリアミ ド (Deet)、リモネン、リナロール、シトロネラール、 メントン、ヒノキチオール、メントール、グラニオー ル、ユーカリプトール等を挙げることができる。

【0042】共力剤の活性化合物としては、例えばビス-(2,3,3,3-テトラクロルプロピル)エーテル、N-(2-エチルヘキシル)ビスクロ[2,1,1]へプト-5-エン-2,3-ジカルボキシイミド、 α -[2-(2-ブトキシエトキシ)エトキシ]-4.5-メチレンジオキシ-2-プロピルトルエン等を挙げることができる。本発明の有害生物防除剤の使用形態は任意であり、一般式(1)の化合物に農薬補助剤

を加えて、例えば水和剤、顆粒水和剤、水溶剤、乳剤、 液剤、水中懸濁剤・水中乳濁剤等のフロアブル剤、カプ セル剤、粉剤、粒剤、エアゾール剤等に製剤して使用さ れる。これらの製剤中における本発明化合物等の有効成 分化合物の含有量は任意であるが、通常は有効成分の合 計量で0.001~99.5重量%の範囲から選ばれ、製剤形態、 施用方法等の種々の条件により適宜決定すればよいが、 例えば、水和剤、顆粒水和剤、水溶剤、乳剤、液剤、フ ロアブル剤、カプセル剤等では約0.01~90重量%程度、 好ましくは1~50重量%、粉剤や粒剤等では0.1~50重量 %程度、好ましくは1~10重量%、エアゾール剤等では 約0.001~20重量%程度、好ましくは0.01~2重量%の有 効成分を含有するように製造することが好適である。 【0043】用いられる農薬補助剤は、有害生物の忌避 効果、防除効果、駆除効果の向上、および安定化、分散 性の向上等の目的で、例えば、担体(希釈剤)、展着 剤、乳化剤、湿展剤、分散剤、崩壊剤等を用いることが できる。液体担体としては、水、トルエン、キシレン等 の芳香族炭化水素、メタノール、ブタノール、グリコー ル等のアルコール類、アセトン等のケトン類、ジメチル ホルムアミド等のアミド類、ジメチルスルホキシド等の スルホキシド類、メチルナフタレン、シクロヘキサン、 動植物油、脂肪酸等を挙げることができる。また、固体 担体としてはクレー、カオリン、タルク、珪藻土、シリ カ、炭酸カルシウム、モンモリロナイト、ベントナイ ト、長石、石英、アルミナ、鋸屑、ニトロセルロース、 デンプン、アラビアゴム等を用いることができる。乳化 剤、分散剤としては通常の界面活性剤を使用することが でき、例えば、高級アルコール硫酸ナトリウム、ステア リルトリメチルアンモニウムクロライド、ポリオキシエ チレンアルキルフェニルエーテル、ラウリルベタイン等 の陰イオン系界面活性剤、陽イオン系界面活性剤、非イ オン系界面活性剤、両性イオン系界面活性剤等を用いる ことができる。また、ポリオキシエチレンノニルフェニ ルエーテル、ポリオキシエチレンラウリルフェニルエー テル等の展着剤;ジアルキルスルホサクシネート等の湿 展剤;カルボキシメチルセルロース、ポリビニルアルコ ール等の固着剤;リグニンスルホン酸ナトリウム、ラウ リル硫酸ナトリウム等の崩壊剤を用いることができる。 【0044】例えば、水和剤の場合、有効成分である一 般式(I)で表わされる化合物、固形担体、および界面 活性剤等を混合して原末を製造し、さらにこの原末を使 用に際して所定濃度に水で希釈して施用することができ る。乳剤の場合、有効成分の上記化合物に対して溶剤お よび界面活性剤等を混合して原液の乳剤を製造すること ができ、更にこの原液を使用に際して所定濃度に水で希 釈して施用することができる。粉剤の場合、有効成分の 上記化合物、固形担体等を混合してそのまま施用するこ とができ、粒剤の場合には、有効成分の上記化合物、固 形担体、および界面活性剤等を混合して造粒することに

より製造し、そのまま施用することができる。もっとも、上記の各製剤形態の製造方法は上記のものに限定されることはなく、有効成分の種類や施用目的等に応じて 当業者が適宜選択することができるものである。

【0045】使用方法は、有害生物の種類や発生量や、対象とする作物・樹木等の種類や栽培形態・生育状態により異なるが、例えば節足動物類、腹足類、線虫類等に対しては、通常これらの有害生物による被害が発生している場所、ないしは被害の発生が予測される場所に対して、一般的に10アール当たり有効成分量で0.1~1000g、好ましくは1~100gを施用すればよい。

【0046】具体的な施用方法としては、例えば前述の水和剤、顆粒水和剤、水溶剤、乳剤、液剤、水中懸濁剤・水中乳濁剤等のフロアブル剤、カプセル剤等ではこれらを水で希釈し、対象とする作物、樹木等の種類や栽培形態・生育状態によって10アール当たり10~1000リットルの範囲で、作物、樹木等に対して散布すればよい。また粉剤、粒剤、エアゾール剤の場合には、その製剤の状態で先述の使用方法の範囲で作物、樹木等に施用すればよい。

【0047】対象とする有害生物が、主として土壌中で作物、樹木等を加害する場合には、例えば水和剤、顆粒水和剤、水溶剤、乳剤、液剤、水中懸濁剤・水中乳濁剤等のフロアブル剤、カプセル剤等を水で希釈し、一般に10アール当たり5~500リットルの範囲で施用すればよい。この際、施用区域全体に均等となるように土壌表面に薬剤を散布するか、又は土壌中に灌注してもよい。製剤の形態が粉剤又は粒剤等の際には、その製剤をそのまま、施用する区域全体に均等となるように土壌表面に散布すればよい。また散布あるいは灌注の際に、有害生物による被害から保護したい種子や作物、樹木等の周囲のみに施用してもよいし、散布中又は散布後に耕耘し、有効成分を機械的に分散させてもよい。

【0048】さらには、本発明化合物を有効成分とする 有害生物防除剤を公知の方法によって植物種子の周囲に 付着させてもよい。この様な処理によって、この種子の 播種後に、土壌中における有害生物による被害を防ぐこ とができるのみでなく、成長後、植物体の茎葉部や花、 果実等を、有害生物による被害から保護することもでき る。

【0049】前述の樹木や倒木、加工木材、貯蔵木材等をシロアリ類又は甲虫類等による被害から保護する場合には、例えば樹木や木材等の周囲土壌等に対して油剤、乳剤、水和剤、ゾル剤の散布・注入・灌注・塗布、粉剤、粒剤等の使用形態にて薬剤を散布する等の方法を挙げることができる。この様な場面においても、本発明化合物を有効成分とする有害生物防除剤を単独又は他の活性化合物、例えば殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺菌剤、忌避剤及び共力剤等と併用又は混合剤として使用して使用することができる。

【0050】これらの製剤中における本発明化合物等の有効成分化合物の含有量は任意であるが、通常は有効成分の合計量で0.0001~95重量%であり、油剤や粉剤、粒剤等では0.005~10重量%、乳剤、水和剤及びゾル剤等では0.01~50重量%含有させるのが好ましい。具体的には、例えばシロアリ類や甲虫類等を駆除・防除する場合は、1㎡当たり有効成分化合物量として0.01~100gを土壌あるいは木材表面に散布すればよい。

【0051】(B) 畜産業、水産業場面等

本発明化合物を有効成分とする有害生物防除剤は畜産業や水産業及び家庭で飼育されるペット等の動物に対して内的又は外的に寄生し、皮膚等の摂食や吸血等の直接の危害を加えたり、病気を蔓延させる等の被害を加える節足動物類、線虫類、吸虫類、条虫類、原生動物類等の有害生物の忌避、駆除・防除に有効であり、これら有害生物が関係する疾病の予防・治療にも使用できる。対象となる動物としては、脊椎動物、例えば温血脊椎動物である牛、羊、山羊、馬、豚等の家畜や養殖魚類等;更には家禽、犬、猫等やマウス、ラット、ハムスター、リス等の齧歯類;フェレット等の食肉目及び魚類等のペットや実験動物等を挙げることができる。

【0052】有害生物のうち、節足動物門昆虫綱及びク モ綱としては、以下のものを例示することができる。双 翅目としては、例えばヤマトアブ、ツメトゲブユ、アカ ウシアブ等のアブ科;クロバエ、イエバエ、サシバエ等 のイエバエ科;ウマバエ等のウマバエ科;ウシバエ等の ウシバエ科;ヒツジキンバエ等のクロバエ科;オオキモ ンノミバエ等のノミバエ科;ヒトテンツヤホソバエ等の ツヤホソバエ科;オオチョウバエ、ホシチョウバエ等の チョウバエ科;シナハマダラカ、コガタアカイエカ、ヒ トスジシマカ等のカ科;オオブユ等のブユ科;ウシヌカ カ、ニワトリヌカカ等のヌカカ科などを例示することが できる。

【0053】また、隠翅目としては、例えばネコノミ、イヌノミ等のヒトノミ科などを挙げることができる。シラミ目としては、ブタジラミ、ウシジラミ等のカイジュウジラミ科; ウマハジラミ等のケモノハジラミ科; ウシホソジラミ等のケモノホソジラミ科; ニワトリハジラミ等のタンカクハジラミ科などを挙げることができる。節足動物門クモ綱のダニ目としては、例えばフタトゲチマダニ、ヤマトマダニ、オウシマダニ、タカサゴキララマダニ等のマダニ科; トリサシダニ等のオオサシダニ科; アクモ等のワクモ科; ブタニキビダニ等のニキビダニ 科: ネコショウセンコウヒゼンダニ、トリヒゼンダニ等のヒゼンダニ科; ミミヒゼンダニ、ウシキュウセンヒゼンダニ等のキュウセンダニ科などを挙げることができる

【0054】線形動物門双線網としては、以下のものを 例示することができる。円虫目としては、例えば牛鉤 虫、豚腎虫、豚肺虫、毛様線虫、牛腸結節虫等を挙げる ことができる。回虫目としては例えば、豚回虫、鶏回虫等を挙げることができる。扁形動物門吸虫綱としては、例えば日本住血吸虫、肝テツ、鹿双口吸虫、ウエステルマン肺吸虫、日本鶏卵吸虫等を挙げることができる。条虫綱としては、例えば葉状条虫、拡張条虫、ベネデン条虫、方形条虫、刺溝条虫、有輪条虫等を挙げることができる。原生動物門鞭毛虫綱では、根鞭毛虫目としては、例えばHistomonas等を、原鞭毛虫目としては、例えばGiardia等を、トリコモナス目としては、例えばTri chomonas等を挙げることができる。

【0055】さらに、肉質網のアメーバ目としては、例えばEntamoeba等を、胞子虫綱のピロプラズマ亜綱としては、例えばTheilaria、Babesia等を、晩生胞子虫亜綱としては、例えばTheilaria、Plasmodium、Toxoplasma等を挙げることができる。本発明化合物を有効成分とする有害生物防除剤は、上述した畜産業や水産業場面等において有効な製剤、及び製剤によって調製された任意の使用形態で、単独又は他の活性化合物、例えば殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺菌剤、共力剤、植物調整剤、除草剤及び毒餌等と併用又は混合剤として使用することが出来る。より具体例な活性化合物として、「(A)農業、林業場面等」の項で例示した物質等を挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

【0056】具体的な施用方法としては、例えば家畜やペット等の飼料に混入したり、適切な経口摂取可能な調合薬剤組成物、例えば薬剤上許容しうる担体やコーティング物質を含む錠剤、丸剤、カプセル剤、ペースト、ゲル、飲料、薬用飼料、薬用飲料水、薬用追餌、除放性大粒丸薬、その他胃腸管内に保留されるようにした除放性デバイス等として経口投与したり、又はスプレー、粉末、グリース、クリーム、軟膏、乳剤、ローション、スポットオン、ポアオン、シャンプー等として経皮投与することができる。

【0057】経皮投与や局所投与の方法としては、局部的又は全身的に節足動物を防除するように動物に取り付けたデバイス(例えば首輪、メダリオンやイヤータッグ等)を利用することもできる。以下に家畜やペット等に対する駆虫剤として使用する場合の具体的な経口投与方法及び経皮投与方法を示すが、本発明において、これらの投与方法は必ずしも以下の記述に限定されるものではない。薬用飲料製剤として経口的に投与する場合には、通常、ベントナイトのような懸濁剤あるいは湿潤剤又はその他の賦形剤と共に適当な非毒性の溶剤又は水で溶解して懸濁液又は分散液とすればよく、必要に応じて消泡剤を含有してもよい。飲料製剤においては、一般に有効成分化合物量を0.01~1.0重量%、好ましくは0.01~0.1重量%含有する。

【0058】乾燥した固体の単位使用形態で経口的に投与する場合には、通常所定量の有効成分化合物を含有す

るカプセル、丸薬又は錠剤を用いる。これらの使用形態は、活性成分を適当に細粉砕した希釈剤、充填剤、崩壊剤及び又は結合剤、例えばデンプン、乳糖、タルク、ステアリン酸マグネシウム、植物性ゴム等と均質に混和することによって製造される。このような単位使用処方は、治療される宿主動物の種類、感染の程度及び寄生虫の種類及び宿主の体重によって駆虫剤の重量及び含量を適宜設定すればよい。

【0059】飼料によって投与する場合には、有効成分化合物を飼料に均質に分散させるか、薬剤をトップドレッシングとして使用するかペレットの形態として使用する等の方法などを挙げることができる。抗寄生虫効果を達成するためには、通常、最終飼料中に有効成分化合物を0.0001~0.05重量%、好ましくは0.0005~0.01重量%を含有する。

【0060】液体担体賦形剤に溶解又は分散させた場合には、前胃内、筋肉内、気管内又は皮下注射によって非経口的に動物に投与すればよい。非経口投与であるので、有効成分化合物は落花生油、綿実油等の植物油と混合するのが好ましい。このような製剤処方においては、一般に有効成分化合物を0.05~50重量%、好ましくは0.1~0.2重量%を含有する。また、ジメチルスルホキシドあるいは炭化水素系溶剤等の担体と混合した製剤は、スプレー又は直接的注加によって家畜やペットの外部表面に直接、そして局所的に投与することができる。

【0061】(C)公衆衛生場面等

本発明の有害生物防除剤は、衣・食・住環境に悪影響を及ぼしたり、更には人体に危害を加えたり、病原体の運搬や媒介をする等の公衆衛生場面等における有害生物に対して、公衆衛生状態の維持等のための忌避、駆除・防除にも有効である。具体的には本発明の有害生物防除剤は、例えば住居自体やその屋内外の木材、木製家具等の木材加工品、貯蔵食品、衣類、書籍、動物製品(皮、毛、羊毛及び羽毛等)や植物製品(衣類、紙等)等に被害を及ぼし、衛生的な生活に悪影響を及ぼす鱗翅目類、甲虫類、シミ類、ゴキブリ類、ハエ類及びダニ類等の忌避、駆除・防除に有効である。この様な公衆衛生場面における有害生物として、具体的には以下のものを例示することができる。

【0062】節足動物門昆虫綱としては、以下のものを例示することができる。鱗翅目としては、例えばモンシロドクガ等のドクガ科;クヌギカレハガ等のカレハガ科;アオイラガ等のイラガ科;タケノホソクロバ等のマダラガ科;スジマダラノメイガ、スジコナマダラメイガ、ノシメマダラメイガ等のメイガ科;バクガ等のキバガ科;イガ、コイガ等のヒロズコガ科などを挙げることができる。甲虫目としては、例えばアオカミキリモドキ等のカミキリモドキ科;マメハンミョウ等のツチハンミョウ科;アオバアリガタハネカクシ等のハネカクシ科;フクゾウムシ、ココクゾウムシ等のオサゾウムシ科;ア

ズキゾウムシ、エンドウゾウムシ、ソラマメゾウムシ等のマメゾウムシ科; コクヌストモドキ等のゴミムシダマシ科; ノコギリヒラタムシ、カクムネヒラタムシ等のヒラタムシ科; タバコシバンムシ、ジンサンシバンムシ等のシバンムシ科; ヒメカツオブシムシ、ヒメマルカツオブシムシ、ハラジロカツオブシムシ等のカツオブシムシ科; ニセセマルヒョウホンムシ等のヒョウホンムシ科; チビタケナガシンクイムシ、コナナガシンクイムシ等のナガシンクイムシ科; ヒラタキクイムシ等のヒラタキクイムシ科などを挙げることができる。

【0063】膜翅目としては、例えばキイロスズメバチ 等のスズメバチ科:オオハリアリ等のアリ科:キオビベ ッコウ等のベッコウバチ科などを挙げることができる。 双翅目としては、例えばヤマトヤブカ等のカ科; ヌカカ 等のヌカカ科; セスジュスリカ等のユスリカ科; アシマ ダラブユ等のブユ科;アオコブアブ等のアブ科;イエバ 工等のイエバエ科:ヒメイエバエ等のハナバエ科:クロ キンバエ等のクロバエ科;センチニクバエ等のニクバエ 科;キイロショウジョウバエ等のショウジョウバエ科; チーズバエ等のチーズバエ科などを挙げることができ る。隠翅目としては、例えばヒトノミ等のヒトノミ科な どを挙げることができる。粘管目としては、例えばムラ サキトビムシ等のヒメトビムシ科などを挙げることがで きる。ゴキブリ目としては、例えばチャバネゴキブリ、 キョウトゴキブリ等のチャバネゴキブリ科;ワモンゴキ ブリ、クロゴキブリ、ヤマトゴキブリ等のゴキブリ科な どを挙げることができる。直翅目としては、例えばマダ ラカマドウマ、カマドウマ等のコロギス科などを挙げる ことができる。シラミ目としては、例えばアタマジラミ 等のヒトジラミ科:ケジラミ等のケジラミ科などを挙げ ることができる。半翅目としては、例えばトコジラミ等 のトコジラミ科; オオトビサシガメ等のサシガメ科など を挙げることができる。シロアリ目としては、例えばヤ マトシロアリ、イエシロアリ等のミゾガシラシロアリ 科:ダイコクシロアリ等のレイビシロアリ科などを、チ ャタテムシ目としては、例えばツヤコチャタテ等のコチ ャタテ科;ヒラタチャタテ等のコナチャタテ科などを挙 げることができる。シミ目としては、例えばヤマトシ ミ、セイヨウシミ等のシミ科などを挙げることができ る。

【0064】節足動物門クモ網としては、以下のものを例示することができる。ダニ目としては、例えばシュルツェマダニ等のマダニ科;イエダニ等のオオサシダニ科;ミナミツメダニ等のツメダニ科;シラミダニ等のシラミダニ科;ニキビダニ等のニキビダニ科;ヤケヒョウヒダニ等のチリダニ科;ヒゼンダニ等のヒゼンダニ科;アカツツガムシ等のツツガムシ科;ケナガコナダニ、コウノホシカダニ等のコナダニ科;サトウダニ等のサトウダニ科などを挙げることができる。また、真正クモ目としては、例えばカバキコマチグモ等のフクログモ科;ア

シダカグモ等のアシダカグモ科;シモングモ、イエユウレイグモ等のユウレイグモ科; ヒラタグモ等のヒラタグモ科;チャスジハエトリ、ミスジハエトリ等のハエトリグモ科などを挙げることができる。サソリ目としては、例えばマダラサソリ等のキョクトウサソリ科などを挙げることができる。

【0065】その他節足動物門として、唇脚綱オオムカデ目としては、例えばトビズムカデ、アオズムカデ等のオオムカデ科を、ゲジ目としては、例えばゲジ等のゲジ科を挙げることができる。また節足動物門倍脚綱オビヤスデ目としては、例えばトヤケヤスデ科を、節足動物門甲殻綱等脚目としては、例えばワラジムシ等のワラジムシ科を挙げることができる。さらに、環形動物門蛭綱顎蛭目としては、例えばヤマビル等のヤマビル科を挙げることができる。

【0066】本発明の有害生物防除剤は、上述した公衆衛生場面において有効な製剤、及び製剤によって調製された任意の使用形態で、単独又は他の活性化合物、例えば殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺菌剤、共力剤、植物調整剤、除草剤及び毒餌等と併用又は混合剤として使用することが出来る。具体例な他の活性化合物としては、「(A)農業、林業場面等」の項で例示した物質等を挙げることができるが、必ずしもこれらに限定されるものではない。

【0067】本発明の有害生物防除剤の使用形態は任意であり、例えば上述の動物製品や植物製品等を保護する際には、油剤、乳剤、水和剤、粉剤等の散布、樹脂蒸散剤等の設置、燻煙剤や煙霧剤の処理、顆粒、錠剤及び毒餌の設置、エアロゾールの噴霧等の方法で防除することができる。これらの製剤中における有効成分化合物量としては、0.0001~95重量%含有するのが好ましい。

【0068】施用方法としては、有害生物、例えば直接の危害を与える節足動物類や病気の媒介者である節足動物類等に対しては、これらが潜在しうる周囲に例えば油剤、乳剤、水和剤等の散布・注入・灌注・塗布、粉剤等の散布、燻蒸剤、蚊取線香・自己燃焼型燻煙剤・化学反応型煙霧剤等の加熱煙霧剤、フォッギング等の燻煙剤、UV剤等の製剤によって処理する方法などを挙げることができる。また別の製剤形態、例えば顆粒、錠剤又は毒餌としてこれらを設置したり、フローティング粉剤、粒剤等を水路、井戸、貯水池、貯水槽及びその他の流水もしくは停留水中へ滴下するなどの方法で施用すればよい。

【0069】更に、農業、林業における有害生物でもあるドクガ類等に対しては、「(A)農業、林業場面等」の項に記載した方法と同様な方法で防除することが可能であり、ハエ類等に対しては家畜の飼料中に混入して糞に有効成分が混入されるようにする方法、及びカ類等に対しては電気蚊取器等で空中へ揮散させる方法等も有効である。

【0070】これらの使用形態である製剤は、前記したような他の活性化合物、例えば殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺菌剤、忌避剤又は共力剤との混合剤として存在することもでき、これらの製剤中には有効成分化合物が合計量で0.0001~95重量%含有するのが好ましい。なお、使用時に他の活性化合物と併用することも可能である。

【0071】家屋や木製家具等をシロアリ類又は甲虫類等による被害から保護する場合には、例えばこれらやその周辺に対して油剤、乳剤、水和剤、ゾル剤の散布・注入・灌注・塗布、粉剤、粒剤等の使用形態にて薬剤を散布する等の方法などを挙げることができる。この様な場面においても本発明化合物を単独又は他の活性化合物、例えば殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺菌剤、忌避剤及び共力剤等と併用又は混合剤として使用して使用することが出来る。

【0072】これらの製剤中における本発明化合物等の有効成分化合物の含有量は任意であるが、通常は有効成分の合計量で0.0001~95重量%であり、油剤や粉剤、粒剤等では0.005~10重量%、乳剤、水和剤及びゾル剤等では0.01~50重量%含有させるのが好ましい。具体的には、例えばシロアリ類や甲虫類等を駆除・防除する場合は、1 m² 当たり有効成分化合物量として0.01~100gを周囲あるいは直接表面に散布すればよい。

【0073】人体に危害を加えたり、病原体の運搬や媒介をする等の有害生物の忌避、駆除・防除に際しては、上述のようなものの他に、適切な経口摂取可能な調合薬剤組成物等、例えば薬剤上許容しうる担体やコーティング物質を含む錠剤、丸剤、カプセル剤、ペースト、ゲル、飲料、薬用飼料、薬用飲料水、薬用追餌、除放性大

粒丸薬、その他胃腸管内に保留されるようにした除放性 デバイス等として経口投与、あるいはスプレー、粉末、 グリース、クリーム、軟膏、乳剤、ローション、スポッ トオン、ポアオン、シャンプー等として経皮投与するこ とができる。具体的な製剤処方等は、「(B)畜産業、 水産業場面等」の項で説明した方法と同様に処方するこ とができる。

[0074]

【実施例】以下、本発明を実施例、製剤例、試験例によりさらに具体的に説明するが、本発明はその要旨を越えない限りこれらの例に限定されるものではない。

実施例 1

2-(tert-ブチル)-4-クロロ-5-(4-(4-トリフルオロメトキシフェニル)ベンジルアミノ]-3(2H)-ピリダジノンの合成

2- (tert-ブチル)-4,5-ジクロロ-3(2H)-ピリダジノン (0.75 g)、4-(4-トリフルオロメトキシフェニル)ベンジルアミン (0.95 g)、炭酸カリウム(0.49 g)及びN,N-ジメチルホルムアミド (10 ml) の混合物を150 ℃で 2時間加熱した。反応混合物を水 (50 ml) にあけ、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、表 − 1 記載の化合物NO.21 を0.55 g得た。融点は116-117 ℃であった。

【0075】実施例2

実施例 1の方法に準じて、表-1 記載の化合物を合成した。

【0076】 【表1】

			長一1		
化合物No.	R1	X	R²	(H ³)m	(プ) 永編
1	CH3	Ci	H	OCF3	175-177
2	C ₃ H ₆	Cı	H		160-162
8	i-C ₂ H ₇	CI	Ħ	O O OCE,	175-176

[0077]

表一1 (つづき)

化合物No.	Ri	X	R ²	(H ²)m	継点 (*C)
4	€C4H8	CI	H	00	204-206
5	t-C₄H _p	C1	H	C) COH	171-172
6	t-C ₄ Hg	Cì	Н	O Cart	159-154
7	t-C ₄ H ₉	CI	H	C Cather	222-228
8	t-C _t H ₉	C1	H	C ₅ H _m ·n	121-123
9	t-C _c H _g	Cl	H		138-139
10	t-C ₄ H ₉	C1	Н		165-167
11	t-C ₄ H ₀	Cl	H	OF,	157-158

[0078]

【表3】

表-1(つづき)

			マー・(フラミ)				
化合物No.	Rı	X	Rª	(R ²)m	融点 (°C)		
12	t-C₄H₃	Cl	н	O COOKS	157-158		
13	t-C ₄ H ₉	Cl	н	OC2HS	115-117		
14	t÷C₄H ₀	CI	H	OC H-n	134-136		
16 .	t-C _t H ₉	CI	Ħ	OC3H4-I	164-166		
16	t-C ₄ H ₅	Cı	H	J TOGHINA	119-120		
17	t-C₁H₃	Cl	H	COCHE,	99-101		
18	t-C₄E₃	Ö	H	Q cor,	100-102		
19	t-C ₄ H ₆	Cti	H	Do.	129-131		
20	t-C ₄ H ₆	CI	н	0000	125-128		
21	t-C,H,	Cl	H	O O	116-117		
22	t-C₄H _e	Br	H	J 00#,	114-115		
23	t-C ₄ H ₉	CI	CH ₃		89-90		

【0079】 【表4】

表-1(つづき)

化合物No.	Rı	Х	R ²		配点 (℃)
24	t-C ₄ H ₉	Cl	H	7000	92-93
25	t-C₄H,	C1	H	COOF.	127-128
26	t-C ₄ H ₉	C)	H	CI OCF,	120-122
27	t-C _t H,	Cl	H	OCH,	161-163
28	t-C ₄ H ₆	Cl	H	OCH ₂ OF ₃	186-188
29	t-C ₄ H ₃	Cl	H	CHe	138-139
80	t-C ₄ H ₉	Cl	H	CT ₀	148-149
31	t-C ₄ H ₀	CI	H	COOF ₂ CHFOF ₃	141-142

[0080]

【表5】

表一1(つづき)

化含物No.	R¹	X	R³		融点 (°C)
82	t-C₁H,	Cl	H	O SON,	145-146
33	t-C ₄ H ₀	CI	Ħ	DO'	177-179
34	t-C ₄ H ₅	Cl	H	00°	143-145
35	t-C ₄ H ₉	Cl	H	J S Br	114-116

【0081】以下、本発明の化合物を有効成分として含む農園芸用殺虫、殺ダニ剤の製剤例を示すが、本発明の使用形態は下記のものに限定されるものではない。

製剤例1:水和剤

本発明の化合物20重量部、カープレックス#80(ホワイトカーボン、塩野義製薬株式会社、商品名)20重量部、STカオリンクレー(カオリナイト、土屋カオリン社、商品名)52重量部、ソルポール9047K(アニオン性界面活性剤、東邦化学株式会社、商品名)5重

量部、ルノックスP65L(アニオン性界面活性剤、東邦化学株式会社、商品名)3重量部を配合し、均一に混合粉砕して、有効成分20重量%の水和剤を得た。

【0082】製剤例2:粉剤

本発明の化合物2重量部、クレー(日本タルク社製)9 3重量部、カープレックス#80(ホワイトカーボン、 塩野義製薬株式会社、商品名)5重量部を均一に混合粉 砕して、有効成分2重量%の粉剤を製造した。

製剤例3:乳剤

本発明の化合物20重量部をキシレン35重量部および ジメチルホルムアミド30重量部からなる混合溶媒に溶 解し、これにソルポール3005X(非イオン性界面活 性剤とアニオン性界面活性剤の混合物、東邦化学株式会 社、商品名)15重量部を加えて、有効成分20重量% の乳剤を得た。

【0083】製剤例4:フロアブル剤

本発明の化合物30重量部とソルボール9047K 5 重量部、ソルボンT-20(非イオン性界面活性剤、東 邦化学株式会社、商品名)3重量部、エチレングリコール8重量部および水44重量部をダイノミル(シンマル エンタープライゼス社製)で湿式粉砕し、このスラリー 状混合物に1重量%キサンタンガム(天然高分子)水溶 液10重量部を加え、よく混合粉砕して、有効成分20 重量%のフロアブル剤を得た。

【0084】以下、本発明の化合物を有効成分として含む農園芸用殺虫、殺ダニ剤の試験例を示すが、本発明の使用形態は下記のものに限定されるものではない。

試験例1:ハスモンヨトウの幼虫に対する殺虫効果製剤例1の処方にしたがって製造した本発明殺虫剤(水和剤)の水希釈液中に、キャベツ切葉(直径6cm)を1分間浸漬した。浸漬後風乾しプラスチックカップ(内径7cm)に入れ、このカップ内にハスモンヨトウの3令虫を5頭放虫した(1濃度、2反復)。25℃の恒温室内に保持し、放虫5日後に幼虫の生死および苦悶を調査し、苦悶虫を1/2頭死として殺虫活性(%)を求めた。結果を表-2に示した(以下の表中、化合物番号は表-1のNoに対応している)。

[0085]

【表6】

表一2

化合物 No.	微度(ppm)	殺虫率(%)
10	500	100
17	500	100
21	500	100
22	500	100
23	500	100
25	500	100
29	500	100
34	500	100
35	500	100

【 0 0 8 6 】 試験例 2 : ナミハダニの成虫に対する殺ダニ効果

水を入れた試験管(容量: 50ml)に、初生棄1枚を残したいんげん苗の茎部を挿し、ナミハダニの雌成虫を1葉あたり15頭接種した。接種1日後にハダニの寄生した葉を製剤例3の処方に従って製造した本発明殺ダニ剤(乳剤)の水希釈液に浸漬処理(約5秒間)した(1濃度、2反復)。25℃の恒温室内に保持し、処理後5日目にいんげん葉上のハダニ雌成虫数を調査し、その結果に基づき殺成虫率(%)を求めた。結果を表-3に示した。

[0087]

【表7】

₹-- 3

3 - 3					
化合物 No.	溢度(ppm)	段虫率(%)			
2	500	100			
5	500	100			
6	500	100			
10_	500	100			
12	500	100			
13	500	100			
14	500	100			
15	500	100			
17	500	100			
20	500	100			
21	500 ·	100			
22	500	100			
23	500	100			
25	500	100			
28	500	100			
29	500	100			
30	500	100			
31	500	100			
92	500	100			
83	500	100			
34	500	100			
85	500	100			

[0088]

【発明の効果】本発明のピリダジノン類は、有害な昆虫、ダニ類に対して優れた防除効果を有すし、農林業、防疫用の優れた殺虫、殺ダニ剤である。更に、畜産、水産業或いは各種の製品の保存上、公衆衛生上の各種有害生物の防除剤としても期待される。

フロントページの続き

(72)発明者 福地 俊樹

神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地 三菱化学株式会社内 Fターム(参考) 4H011 AC01 AC04 BA01 BB09 BB11 BC01 BC06 BC18 BC19 BC20 DA02 DA14 DA15 DA16 DC04

DHO3 DH14